

Membrane module for removing hydrogen from product gas produced in a reforming reaction in fuel cells of vehicles has separating elements containing an electrically conducting substrate

Patent number: DE19920517

Publication date: 2000-08-17

Inventor: WIELAND STEFFEN (DE); POSCHMANN THOMAS (DE)

Applicant: DAIMLER CHRYSLER AG (DE)

Classification:

- **international:** B01D53/22; B01D63/00; C01B3/56

- **european:** C01B3/50B, B01D53/22D

Application number: DE19991020517 19990505

Priority number(s): DE19991020517 19990505

Abstract of DE19920517

Membrane module comprises one or more separating elements (1) containing a porous substrate (2) which has an active coating (3). The substrate is made of an electrically conducting material and an electrical heating current circuit (4) is provided into which the substrate is looped as Ohmic heat resistor.

Data supplied from the **esp@cenet** database - Worldwide

THIS PAGE BLANK (USPTO)

⑯ BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES
PATENT- UND
MARKENAMT

⑯ **Patentschrift**
⑯ **DE 199 20 517 C 1**

⑯ Int. Cl. 7:
B 01 D 53/22
B 01 D 63/00
C 01 B 3/56

⑯ Aktenzeichen: 199 20 517.5-43
⑯ Anmeldetag: 5. 5. 1999
⑯ Offenlegungstag: -
⑯ Veröffentlichungstag
der Patenterteilung: 17. 8. 2000

Innerhalb von 3 Monaten nach Veröffentlichung der Erteilung kann Einspruch erhoben werden

⑯ Patentinhaber:
DaimlerChrysler AG, 70567 Stuttgart, DE

⑯ Erfinder:
Poschmann, Thomas, Dipl.-Phys., 89073 Ulm, DE;
Wieland, Steffen, Dipl.-Ing., 70180 Stuttgart, DE

⑯ Für die Beurteilung der Patentfähigkeit in Betracht
gezogene Druckschriften:

DE 197 57 506 A1

⑯ Membranmodul zur selektiven Permeatgasabtrennung

⑯ Die Erfindung bezieht sich auf ein Membranmodul zur
selektiven Abtrennung eines Permeatgases eines Gasge-
misches vom verbleibenden Restgas mit einem oder meh-
reren Abtrennelementen, die ein poröses Substrat bein-
halten, das mit einer abtrennaktiven Beschichtung ver-
sehen ist.

Erfnungsgemäß ist das poröse Substrat von einem
elektrisch leitfähigen Material gebildet und als ohmscher
Heizwiderstand in einen elektrischen Heizstromkreis ein-
geschleift.

Verwendung z. B. zur selektiven Abtrennung von Wasser-
stoff aus einem durch Reformierung eines Kohlenwasser-
stoffs oder Kohlenwasserstoffderivats erzeugten, wasser-
stoffreichen Gasgemischs zur Speisung von Brennstoff-
zellen eines Brennstoffzellenfahrzeugs.

DE 199 20 517 C 1

Beschreibung

Die Erfindung bezieht sich auf ein Membranmodul zur selektiven Abtrennung eines Permeatgases eines Gasgemischs vom verbleibenden Restgas mit einem oder mehreren Abtrennelementen, die ein poröses Substrat beinhalten, das mit einer abtrennaktiven Beschichtung versehen ist. Derartige Membranmodule werden beispielsweise zur selektiven Abtrennung von Wasserstoff verwendet, der im Produktgas einer Reformierungsreaktion enthalten ist.

Eine wichtige Anwendung sind Brennstoffzellenfahrzeuge, deren Brennstoffzellen mit Wasserstoff betrieben werden, der durch eine Reformierungsreaktion aus mitgeführtem Methanol oder einem anderen Einsatzstoff erzeugt wird. Mit der selektiven Wasserstoffabtrennung durch das Membranmodul wird dabei insbesondere verhindert, daß die Brennstoffzellen durch Kohlenmonoxid vergiftet werden, das im Produktgas der Reformierungsreaktion enthalten ist.

Zur selektiven Wasserstoffabtrennung sind schon seit langem Membranen aus verschiedenen Materialien, wie Keramiken, Gläser, Polymere und Metalle, in Gebrauch, wobei sich Metallmembranen durch eine hohe Selektivität und Temperaturstabilität bei allerdings relativ niedrigen Permeationsraten auszeichnen. Speziell können die zur selektiven Wasserstoffabtrennung eingesetzten Metallfolien beispielsweise aus Palladium oder Palladiumlegierungen bestehen. Palladium ist schon bei Raumtemperatur und niedrigen Wasserstoffdrücken in der Lage, das 600fache bis 900fache seines Volumens an Wasserstoff zu speichern. Für den Einsatz als Membran ist reines Palladium allerdings nicht so gut geeignet, da bei bestimmten Temperaturen eine β -Hybridphase entsteht, die zur Versprödung und damit zur Rißbildung führen kann. Meist wird dem Palladium daher ein Legierungspartner aus den Gruppen VIII oder IB des Periodensystems hinzugefügt. In kommerziell erhältlichen Wasserstoffabtrenneinheiten werden meist gewalzte Folien aus den verschiedenen Palladiumlegierungen in einer Dicke zwischen etwa 50 μm und 100 μm verwendet.

Um den Edelmetallgehalt zur reduzieren, ist es auch bereits bekannt, Membranmodule der eingangs genannten Art zu verwenden, bei denen die abtrennaktive Metalllegierung durch eine geeignete Beschichtungsmethode, wie PVD, CVD, stromlose chemische Beschichtung oder galvanische Abscheidung, auf ein poröses Substrat aufgebracht ist. Dies erlaubt relativ geringe Dicken der abtrennaktiven Beschichtung von weniger als 10 μm . Das poröse Substrat besteht typischerweise aus einem Keramik- oder Glasmaterial.

Die Permeationsrate der abtrennaktiven Komponente des Membranmoduls ist typischerweise temperaturabhängig. Um eine gewünschte Permeationsrate zu erzielen, müssen daher die meisten abtrennaktiven Metalle und Metalllegierungen auf eine materialspezifische Mindestbetriebstemperatur gebracht werden, die über der Raumtemperatur liegt. Dies erfolgt herkömmlicherweise z. B. durch eine äußerere Beheizung des Membranmoduls mit Hilfe einer elektrischen Heizeinrichtung oder durch eine katalytische Verbrennung eines geeigneten, vorzugsweise ohnehin im System verwendeten Brennstoffs am oder im Membranmodul. Neben der abtrennaktiven Membranschicht und gegebenenfalls dem zugehörigen porösen Substrat werden dabei auch häufig weitere Komponenten eines massiven Membranmoduls aufgeheizt, was einen relativ hohen Energieverbrauch und eine vergleichsweise lange Aufheizdauer zur Folge hat.

In der älteren, nicht vorveröffentlichten deutschen Patentanmeldung Nr. 198 04 286.8 ist ein Reaktor für eine katalytische chemische Reaktion beschrieben, in dessen Reaktionsraum poröse Hohlfasern als Membranen zur selektiven Permeatgasabtrennung eingebracht sind, die aus einem elek-

trisch isolierenden Keramik- oder Glasmaterial bestehen und mit einer abtrennaktiven metallischen Beschichtung versehen sind. Zur raschen Aufheizung der abtrennaktiven metallischen Beschichtung ist ein elektrischer Heizstromkreis vorgesehen, in den diese Beschichtung als Ohmscher Heizwiderstand eingeschleift ist.

Der Erfindung liegt als technisches Problem die Bereitstellung eines Membranmoduls der eingangs genannten Art zugrunde, das sich zur selektiven Abtrennung eines aus einem Gasgemisch abzutrennenden Gases, vorliegend Permeatgas genannt, eignet und dessen abtrennaktive Beschichtung im Kaltstartfall mit relativ geringem Energieverbrauch rasch auf eine zur wirksamen selektiven Permeatgasabtrennung geeignete Betriebstemperatur aufgeheizt werden kann.

Die Erfindung löst dieses Problem durch die Bereitstellung eines Membranmoduls mit den Merkmalen des Anspruchs 1. Bei diesem Membranmodul ist das poröse Substrat, auf das die abtrennaktive, d. h. die selektive Permeatgasabtrennung bewirkende Beschichtung aufgebracht ist, von einem elektrisch leitfähigen Material gebildet und als Ohmscher Heizwiderstand in einen elektrischen Heizstromkreis eingeschleift.

Die abtrennaktive Beschichtung gewährleistet bei einer entsprechenden Betriebstemperatur die gewünschte Abtrennung des Permeatgases vom zugeführten Gasgemisch. Beim Kaltstart kann sie sehr rasch dadurch auf die benötigte Betriebstemperatur gebracht werden, daß der elektrische Heizstromkreis aktiviert wird, d. h. eine zugehörige Heizspannung an diesen angelegt wird, so daß das poröse Substrat und mit diesem durch direkten Festkörper-Wärmekontakt die abtrennaktive Beschichtung aufgeheizt werden. Die übrigen, peripheren Komponenten des Membranmoduls können von dieser Aufheizung weitgehend unbeeinflußt bleiben, was einen relativ niedrigen Energieverbrauch und eine kurze Aufheizdauer bis zum Erreichen der gewünschten Betriebstemperatur für die abtrennaktive Beschichtung ermöglicht. Gegenüber Modulen mit Abtrennelementen, bei denen das die abtrennaktive Beschichtung tragende Substrat aus einem elektrisch isolierenden Material besteht und die elektrisch leitfähige, abtrennaktive Beschichtung als Ohmscher Heizwiderstand in einen elektrischen Heizstromkreis eingeschleift ist, ermöglicht die erfindungsgemäße Verwendung eines elektrisch leitfähigen, porösen Substrates als Ohmscher Heizwiderstand durch das größere Volumen desselben eine höhere Heizleistung zur Aufheizung des wärmeleitfähig verbundenen Komplexes aus porösem Substrat und abtrennaktiver Beschichtung.

Für das elektrisch leitfähige, poröse Substrat lassen sich beliebige der hierfür bekannten Materialien verwenden. In einer Weiterbildung der Erfindung nach Anspruch 2 ist hierfür ein Sintermetall, eine leitfähige Keramik oder eine Titanoxidmodifikation, d. h. eine geeignete Zusammensetzung aus Titanoxiden bzw. ein aus Titanoxiden mit eventuellen Minoritätsbestandteilen zusammengesetztes Material, vorgesehen.

Das Membranmodul kann als Plattenstapel mit einem oder mehreren plattenförmigen Abtrennelementen aufgebaut sein, die aus einer ein- oder beidseitig mit der abtrennaktiven Beschichtung versehenen, porösen Substratplatte gebildet sind. In einer weiteren vorteilhaften Realisierung beinhaltet das Membranmodul gemäß Anspruch 3 einen Kanalbündelaufbau aus einem monolithischen porösen Substratkörper, in den mehrere Kanäle eingebracht sind, von denen wenigstens einer zur Führung des Gasgemischs und des Restgases und der oder die anderen zur Führung des Permeatgases dienen, wobei in der Regel zur Permeatgasführung weniger Kanäle als für die Gasgemisch/Restgas-Führung

benötigt werden. Der oder die Kanäle, die das Gasgemisch und das Restgas führen, weisen an ihrer Wandung die abtrennaktive Beschichtung auf.

Eine weitere Ausgestaltung dieses Membranmoduls mit Kanalbündelaufbau ist im Anspruch 4 angegeben. Der monolithische Substratkörper weist hier eine zylindrische Form auf, und die Kanäle erstrecken sich in Längsrichtung im porösen Substratzylinder. Der oder die Kanäle, die das Gasgemisch und das Restgas führen, stehen an einer ersten Stirnseite des Substratzylinders mit zugehörigen Anschlußöffnungen in Verbindung, die in einem dortigen ersten Anschlußelement vorgesehen sind. An der gegenüberliegenden Stirnseite des Substratzylinders befindet sich ein zweites Anschlußelement, das Anschlußöffnungen sowohl für den das Gasgemisch und das Restgas führenden Teil der Kanäle als auch für den das Permeatgas führenden Teil der Kanäle aufweist. Die Zu- und Abführung aller Gasströme erfolgt auf diese Weise stirnseitig. Es versteht sich, daß der poröse Substratzylinder an seinem Umfang durch einen entsprechenden Gehäusezylinder gasdicht abgeschlossen ist. Eine vorteilhafte Kanalkonfiguration für diesen Kanalbündelaufbau mit zylindrischem porösem Substratkörper ist im Anspruch 5 angegeben. Dabei wirkt ein mittiger Kanal als ein das Permeatgas abführender Kanal, während mehrere, ihm umgebende Kanäle die das Gasgemisch und das Restgas führenden Kanäle bilden.

In einer weiteren vorteilhaften Ausgestaltung des Membranmoduls mit einem Kanalbündel in einem monolithischen Substratkörper ist gemäß Anspruch 6 in den oder die Kanäle, die das Gasgemisch und das Restgas führen, ein Katalysatormaterial zur Katalysierung einer gewünschten chemischen Reaktion eingebracht, z. B. als Pelletschüttung. Dadurch kann das Membranmodul als ein chemischer Reaktor zur Durchführung der betreffenden chemischen Reaktion fungieren, wie beispielsweise zur katalytischen Reformierung von Methanol oder eines anderen Kohlenwasserstoffderivats oder eines Kohlenwasserstoffs zwecks Erzeugung eines wasserstoffreichen Gasgemischs, von dem dann der Wasserstoff als Permeatgas direkt aus dem Reaktionsraum abgetrennt wird.

In einer Weiterbildung der Erfindung nach Anspruch 7 ist die abtrennaktive Beschichtung galvanisch oder durch einen CVD-Prozeß oder durch stromloses chemisches Plattieren auf das poröse Substrat aufgebracht. Für die galvanische Abscheidung der abtrennaktiven Beschichtung läßt sich vorteilhaft die Tatsache ausnutzen, daß das poröse Substrat selbst elektrisch leitend ist, was den Galvanisierprozeß verglichen mit anderen Beschichtungsverfahren, wie Sputterbeschichtung, vergleichsweise einfach möglich macht.

Vorteilhafte Ausführungsformen der Erfindung sind in den Zeichnungen dargestellt und werden nachfolgend beschrieben. Hierbei zeigen:

Fig. 1 eine schematische Perspektivansicht eines plattenförmigen Membranmodul-Abtrennelementes mit poröser, elektrisch leitfähiger und beheizbarer sowie einseitig abtrennaktiv beschichteter Substratplatte und

Fig. 2 eine schematische, perspektivische Explosionsansicht eines Membranmoduls mit monolithischem, porösem sowie elektrisch leitfähigem und beheizbarem Substratzylinder mit eingebrachtem Kanalbündel.

Fig. 1 zeigt schematisch ein plattenförmiges Abtrennelement 1, das aus einer rechteckförmigen, porösen Substratplatte 2 besteht, die einseitig mit einer wasserstoffabtrennaktiven Beschichtung 3 versehen ist. Letztere ermöglicht es, von einem an ihrer Außenseite anstehenden, wasserstoffhaltigen Gasgemisch selektiv den Wasserstoff abzutrennen, indem von dem Gasgemisch im wesentlichen nur der Wasserstoff von der abtrennaktiven Beschichtung 3 aufgenommen

wird und durch sie hindurch in die poröse Substratplatte 2 gelangt. Von dort kann der selektiv abgetrennte Wasserstoff z. B. über einen Wasserstoffabzugskanal abgeführt und einer beabsichtigten Verwendung zugeführt werden. Ein entsprechendes Membranmodul beinhaltet, wie dem Fachmann an sich bekannt, eines oder mehrere solcher plattenförmigen Abtrennelemente 1 übereinanderliegend in einem Plattenstapelaufbau. Dabei sind an einer oder mehreren Seiten des Plattenstapels geeignete Anschlußstrukturen vorgesehen, um das wasserstoffhaltige Gasgemisch oder ein Einsatzgemisch zur Erzeugung desselben dem Membranmodul zuzuführen und den Wasserstoff einerseits sowie das nach der Abtrennung des Wasserstoffs vom Gasgemisch verbleibende Restgas andererseits aus diesem abzuführen.

Charakteristischerweise besteht die poröse Substratplatte 2 aus einem elektrischen leitfähigen Material, z. B. einem Sintermetallmaterial oder einer elektrisch leitfähigen Keramik, wie SiC, oder einer geeigneten Zusammensetzung auf der Basis von Titanoxiden. Das Substratmaterial ist so gewählt, daß die Substratplatte 2 einen ausreichend hohen elektrischen Widerstand aufweist, so daß bei Anlegen einer elektrischen Spannung der Spannungsabfall über der Substratplatte 2 ausreicht, in ihr ein gewünschtes Maß an Wärme zu entwickeln, die zur raschen Aufheizung des Abtrennelementes 1 bei einem Kaltstart führt. Mit anderen Worten bildet die poröse, elektrisch leitfähige Substratplatte 2 einen Ohmschen Heizwiderstand, dem ein entsprechender Heizstromkreis 4 zugeordnet ist.

Zum Aufheizen der porösen Substratplatte 2 wird an sie durch den Heizstromkreis 4 eine Heizspannung von einer Spannungsquelle 5 angelegt, wodurch ein Heizstrom I durch den Heizstromkreis 4 und somit durch die poröse Substratplatte 2 fließt, die vorzugsweise an zwei gegenüberliegenden Schmalseiten mit dem Heizstromkreis 4 kontaktiert ist. Dies hat die Erzeugung von Joulescher Wärme in der porösen Substratplatte 2 zur Folge, wodurch sich diese selbst, aber auch die direkt durch Festkörperkontakt mit ihr wärmeleitend verbundene, wasserstoffabtrennaktive Beschichtung 3 aufheizen. Da zum einen die poröse Substratplatte 2 verglichen mit der wasserstoffabtrennaktiven Beschichtung 3 ein großes Ohmsches Heizwiderstandsvolumen bereitstellt und zum anderen außer dieser direkten Beheizung des Abtrennelementes 1 die je nach Anwendungsfall zusätzlichen weiteren Komponenten des Membranmoduls nicht zwangsläufig im selben Maß mitbeheizt werden brauchen, wird erreicht, daß das oder die Abtrennelemente 1 des Membranmoduls und damit insbesondere die wasserstoffabtrennaktive Beschichtung 3 mit relativ geringem Energieverbrauch und kurzer Aufheizdauer auf die für eine effektive Wasserstoffabtrennfunktion gewünschte Betriebstemperatur aufgeheizt werden können.

Fig. 2 zeigt ein Membranmodul mit Rohrbündelaufbau zur selektiven Abtrennung von z. B. Wasserstoff. Dieses Membranmodul beinhaltet einen porösen Substratzylinder 6 aus einem elektrisch leitfähigen Material, der radial außen von einem gasdichten Zylindermantelgehäuse 7 abgeschlossen ist und der in seinem Inneren ein Hohlkanalbündel aufweist. Der poröse Substratzylinder 6 entspricht in seiner Funktion der porösen Substratplatte 2 von Fig. 1 und kann aus einem der dort genannten, elektrisch leitfähigen Materialien bestehen, d. h. beispielsweise aus einem Sintermetall, einer leitfähigen Keramik oder einer Titanoxidmodifikation. Das Hohlkanalbündel beinhaltet mehrere, sich parallel versetzte durch den Substratzylinder 6 hindurch in Zylinderlängsrichtung erstreckende Hohlkanäle, von denen ein Hohlkanal 8 mittig im Substratzylinder und mehrere weitere Kanäle 9 in Zylinderumfangsrichtung gleichmäßig voneinander beabstandet um den mittigen Kanal 8 herum angeordnet sind.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

net sind.

Stirnseitig wird der Substratzylinder 6 mit je einer Abschlußplatte 10, 11 abgeschlossen, wie in der Explosionsansicht durch Pfeile P angedeutet, wobei die Abschlußplatten 10, 11 Anschlußelemente bilden, indem sie geeignete Anschlußöffnungen aufweisen. Speziell ist die Konfiguration der Anschlußöffnungen so gewählt, daß der mittige Hohlkanal 8 einen Permeatgaskanal bildet, über den der selektiv abgetrennte Wasserstoff abgezogen werden kann, während die übrigen, ihn umgebenden Kanäle 9 Gasgemischkanäle bilden, in denen das Gasgemisch geführt wird, welches den abzutrennenden Wasserstoff enthält, und aus denen das nach der Wasserstoffabtrennung verbleibende Restgas wieder abgezogen wird. Dazu sind in die eine, zuführseitige Abschlußplatte 10 Anschlußöffnungen 12a nur für die Gasgemischkanäle 9 eingebracht, während die andere, abfuhrseitige Abschlußplatte 11 sowohl eine mittige Anschlußöffnung 13 für das abzuführende Permeatgas als auch diese umgebende Anschlußöffnungen 12b aufweist, über die das Restgas abgeführt wird.

Die das Gasgemisch und das von diesem nach sukzessiver Wasserstoffabtrennung entlang des Strömungsweges verbleibende Restgas führenden Gasgemischkanäle 9 sind an ihrer Innenwandung mit einer wasserstoffabtrennaktiven Beschichtung 14 entsprechend der wasserstoffabtrennaktiven Beschichtung 3 von Fig. 1 versehen. Das Anbringen dieser wasserstoffabtrennaktiven, metallischen, z. B. aus Palladium oder einer Palladiumlegierung bestehenden Beschichtung 14 erfolgt vorzugsweise durch einen geeigneten galvanischen Prozeß, wobei die Tatsache genutzt werden kann, daß der poröse Substratzylinder 6 elektrisch leitend ist. Eine Beschichtung der Innenwand des mittigen Permeatgaskanals 8 kann z. B. durch stirnseitiges Abdecken desselben während der Galvanisierung verhindert werden. Alternativ sind auch andere Beschichtungsverfahren anwendbar, wie CVD oder stromloses chemisches Plattieren.

Der durch das Membranmodul abgetrennte, aus dem mittigen Permeatgaskanal 8 abgezogene Wasserstoff kann dann einer beabsichtigten Verwendung z. B. als Brennstoff eines Brennstoffzellensystems zugeführt werden. Das wasserstoffabgereicherte Restgas, auch als Raffinatgas bezeichnet, kann je nach Anwendungsfall ebenfalls einer weiteren Verwendung zugeführt werden, z. B. als Brenngas einem katalytischen Brenner zur Beheizung einer Komponente eines Brennstoffzellensystems in einem Brennstoffzellenfahrzeug.

Der elektrisch leitfähige, poröse Substratzylinder 6 ist wiederum als Ohmscher Heizwiderstand in einen elektrischen Heizstromkreis 15 mit zugehöriger Heizspannungsquelle 16 eingeschleift. Dabei können, wie gezeigt, die Anschlußleitungen mit den Abschlußplatten 10, 11 kontaktiert sein, die ebenfalls aus einem elektrisch leitfähigen Material bestehen und elektrisch leitend mit dem porösen Substratzylinder 6 verbunden sind, z. B. durch Verlöten. Im kalten Betriebszustand kann dann der poröse Substratzylinder 6 durch Anlegen einer Heizspannung entsprechend dem Beispiel von Fig. 1 durch die in ihm entwickelte Joulesche Wärme aufgeheizt werden, was die wasserstoffabtrennaktive Beschichtung 14 in den Gasgemischkanälen 9 ebenfalls rasch auf ihre zur Erfüllung einer effektiven Wasserstoffabtrennfunktion nötige Betriebstemperatur bringt. Auch in diesem Beispiel brauchen durch diese direkte Beheizung keine weiteren Membranmodulkomponenten mit aufgeheizt zu werden, was den Heizenergieverbrauch gering und die Aufheizdauer kurz hält.

In einer bevorzugten Realisierung sind die Gasgemischkanäle 9 mit einem Katalysatormaterial z. B. in Form einer Pelletschüttung belegt, das eine gewünschte chemische Re-

aktion katalysiert, wie eine wasserstofferzeugende Reformierungsreaktion, bei der Methanol oder ein anderes Kohlenwasserstoffderivat oder ein Kohlenwasserstoff z. B. mit Wasserdampf reformiert wird. Geeignete Katalysatormaterialien für solche Zwecke sind dem Fachmann bekannt und bedürfen hier keiner weiteren Erläuterung. In dieser Realisierung bildet das Membranmodul dann einen Reformierungsreaktor mit integrierter Wasserstoffabtrennstufe, der unter der Wirkung des Katalysatormaterials aus dem zugeführten Gasgemisch in den Gasgemischkanälen 9 ein wasserstoffreiches Gemisch bildet, von dem der Wasserstoff selektiv durch die abtrennaktive Beschichtung 14 in das Material des porösen Substratzylinders 6 und von dort in den Permeatgaskanal 9 gelangt, von wo er abgezogen werden kann. Bei dieser Ausführungsform der Erfindung kann dann durch den Heizstromkreis 15 auch der von den Gasgemischkanälen 9 gebildete Reformierungsreaktionsraum direkt aufgeheizt und auf diese Weise rasch auf eine gegenüber Raumtemperatur erhöhte Betriebstemperatur gebracht und dort gehalten werden. Wenn die Reformierungsreaktion endotherm abläuft, kann dazu bei Bedarf der Heizstrom im Heizstromkreis 15 während des Reformierungsbetriebs so weit aufrechterhalten werden, daß die vom porösen Substratzylinder 6 gebildete Heizwärme den Wärmebedarf der Reformierungsreaktion deckt. Alternativ ist es selbstverständlich möglich, das Membranmodul als separate Wasserstoffabtrennstufe zu verwenden, das einem Reformierungsreaktor nachgeschaltet ist, dessen Produktgas als wasserstoffhaltiges Gasgemisch in das Membranmodul eingeleitet wird. Es versteht sich, daß alternativ zur gezeigten Verwendung des mittleren Kanals 8 als Permeatgaskanal und der übrigen, ihn umgebenden Kanäle 9 als Gasgemischkanäle jede andere Aufteilung der Kanäle 8, 9 in Permeatgaskanäle einerseits und Gasgemischkanäle andererseits vorgesehen sein kann. Dazu ist lediglich eine entsprechende Konfiguration der Anschlußöffnungen insbesondere der zuführseitigen Abschlußplatte 10 zu wählen, d. h. in die zuführseitige Abschlußplatte 10 werden Anschlußöffnungen nur für diejenigen Kanäle eingebracht, die als Gasgemischkanäle fungieren sollen. An der abfuhrseitigen Abschlußplatte 11 wird dann durch eine geeignete nachgeschaltete Anschlußkonfiguration für eine getrennte Abführung des Permeatgases einerseits und des Restgases andererseits gesorgt. So kann z. B. eine ungefähr hälftige Aufteilung aller Kanäle in Permeatgaskanäle und Gasgemischkanäle vorgesehen sein, vorzugsweise in einer alternierenden Anordnung, in der ein Kanal des einen Typs weitestgehend nur von Kanälen des anderen Typs umgeben ist. Die gezeigten Beispiele verdeutlichen, daß das erfindungsgemäße Membranmodul durch die Verwendung eines elektrisch leitfähigen Materials für das poröse Substrat, welches die abtrennaktive Beschichtung trägt, rasch und mit geringem Energieaufwand vom kalten Betriebszustand auf eine zur effektiven Permeatgasabtrennung benötigte Betriebstemperatur aufgeheizt werden kann, wozu das poröse Substrat als ohmscher Heizwiderstand in einen zugehörigen Heizstromkreis eingeschleift ist. Bevorzugte Anwendungsbereiche des erfindungsgemäßen Membranmoduls liegen in der selektiven Wasserstoffabtrennung sowohl für stationäre und mobile Brennstoffzellensysteme als auch für andere Bereiche der chemischen und elektronischen Industrie. Darüber hinaus eignet sich das erfindungsgemäße Membranmodul selbstverständlich auch zur selektiven Abtrennung eines anderen, in einem Gasgemisch enthaltenen Permeatgases, wozu dann die abtrennaktive Beschichtung darauf abgestimmt geeignet zu wählen ist, wie dem Fachmann an sich bekannt.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

Patentansprüche

1. Membranmodul zur selektiven Abtrennung eines Permeatgases eines Gasgemischs vom verbleibenden Restgas, insbesondere zur selektiven Abtrennung von im Produktgas einer Reformierungsreaktion enthaltendem Wasserstoff, mit einem oder mehreren Abtrennlementen (1), die ein poröses Substrat (2) beinhalten, das mit einer abtrennaktiven Beschichtung (3) versehen ist, dadurch gekennzeichnet, daß 5
 a) das poröse Substrat (2) von einem elektrisch leitfähigen Material gebildet ist und
 b) ein elektrischer Heizstromkreis (4) vorgesehen ist, in den das poröse Substrat als Ohmscher Heizwiderstand eingeschleift ist. 10

2. Membranmodul nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das Substratmaterial ein Sintermetall, eine leitfähige Keramik oder eine Titanoxidmodifikation ist. 15

3. Membranmodul nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß es einen Kanalbündelaufbau mit mehreren Kanälen (8, 9) aufweist, die voneinander abstandet in dem von einem monolithischen Substratkörper (6) gebildeten, porösen Substrat vorgesehen sind und von denen ein erster Teil (9) an der Kanalwand die abtrennaktive Beschichtung (14) aufweist und zur Führung des Gasgemischs und des Restgases und der übrige, zweite Teil (8) zur Führung des Permeatgases dient. 20

4. Membranmodul nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß der Substratkörper (6) von zylindrischer Form ist und sich die Kanäle (8, 9) in Längsrichtung des Substratzylinders erstrecken und an einer ersten Stirnseite des Substratzylinders ein erstes Anschlußelement (10) mit einer oder mehreren Anschlußöffnungen 30 (12) nur für den ersten Teil (9) der Kanäle und an der zweiten, der ersten gegenüberliegenden Stirnseite des Substratzylinders ein zweites Anschlußelement (11) mit mehreren Anschlußöffnungen (12a, 13) für den ersten und den zweiten Teil (8, 9) der Kanäle vorgesehen 35 ist. 40

5. Membranmodul nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß der zweite Teil der Kanäle aus einem einzelnen, im Längsmittbereich des Substratzylinders (6) angeordneten Permeatgaskanal (8) und der erste Teil der Kanäle aus mehreren, in Umfangsrichtung verteilt um den Permeatgaskanal herum angeordneten Kanälen (9) besteht. 45

6. Membranmodul nach einem der Ansprüche 3 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß der erste Teil (9) der Kanäle ein Katalysatormaterial zur Katalysierung einer chemischen Reaktion beinhaltet, bei der ein zugeführter Einsatzstoff in ein das Permeatgas enthaltendes Gasgemisch umgesetzt wird. 50

7. Membranmodul nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß die abtrennaktive Beschichtung (3) durch galvanische Abscheidung, einen CVD-Prozeß oder stromloses chemisches Plättieren auf eine zugehörige Oberfläche des porösen Substrats (2) aufgebracht ist. 55 60

Hierzu 1 Seite(n) Zeichnungen

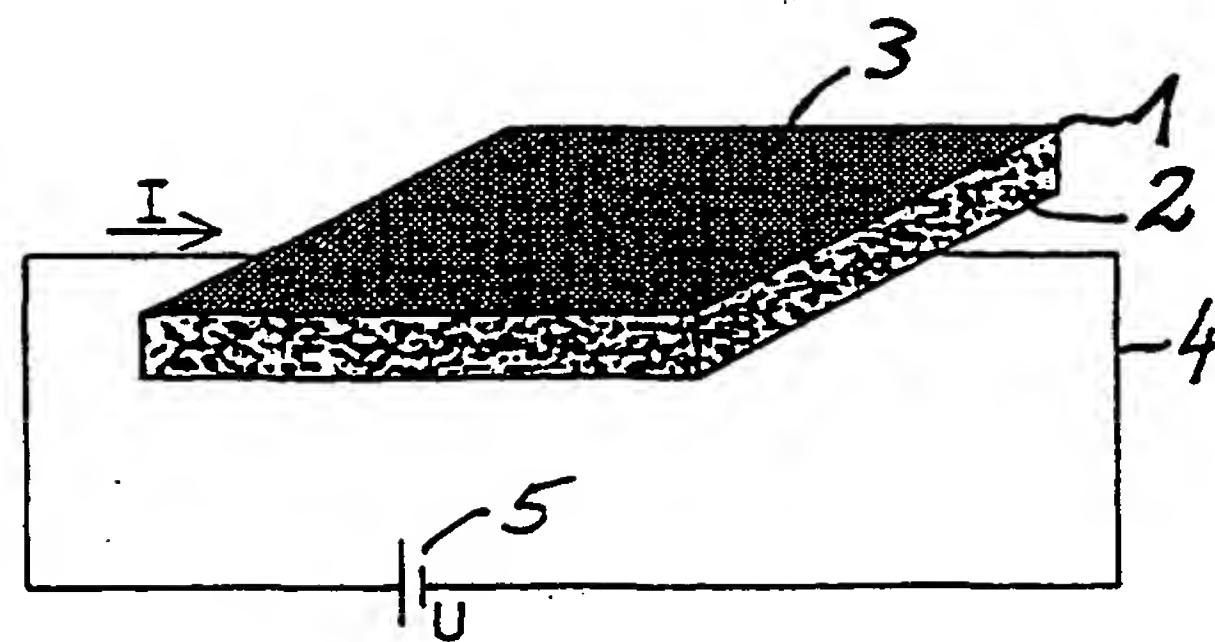


Fig. 1

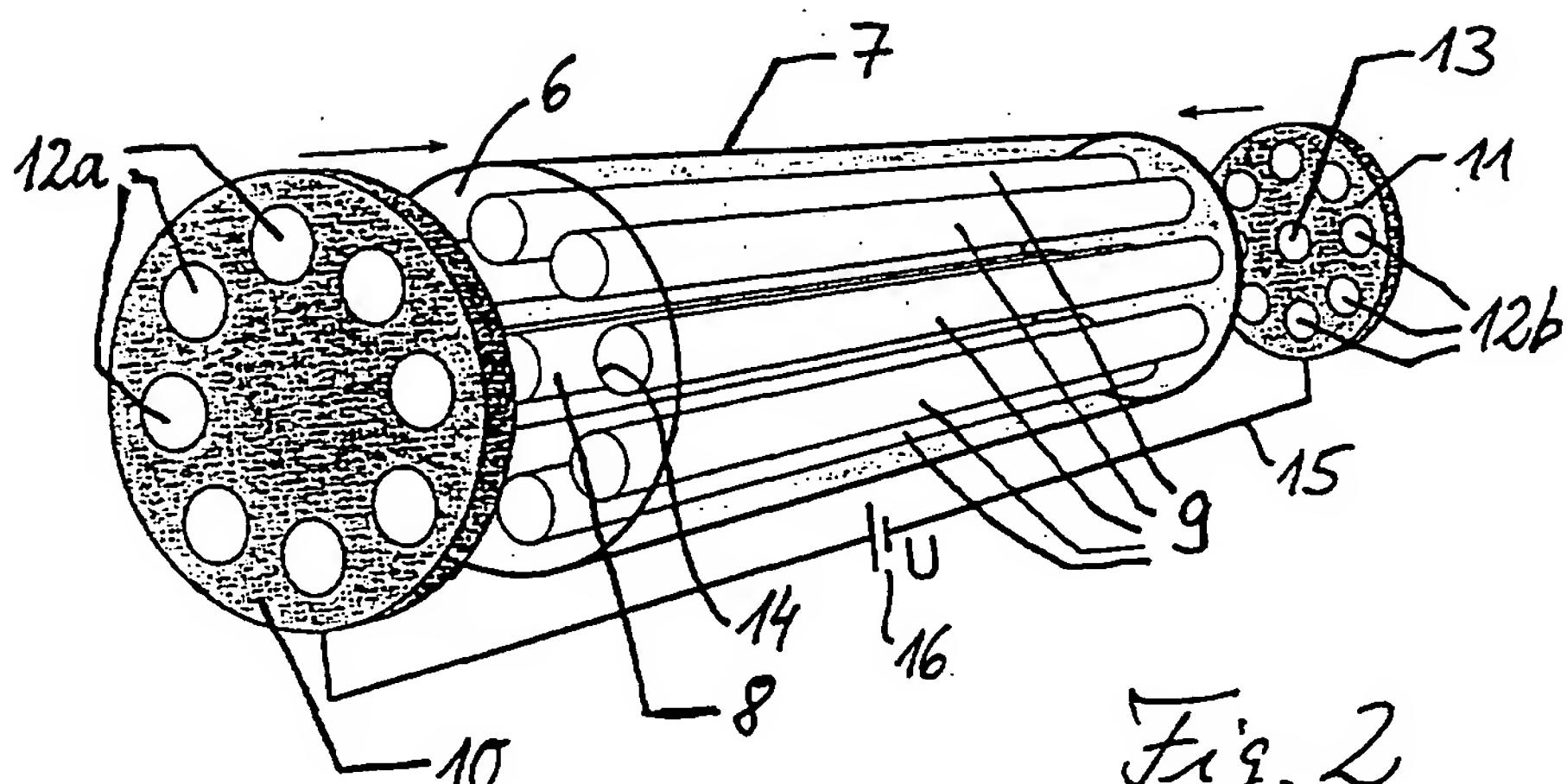


Fig. 2